

答 弁 書

Reply



特許庁審査官 藤原 浩子殿 To EXAMINER Ms. Hiroko FUJIWARA

1. 国際出願の表示 Identification of application

PCT/JP98/05638

2. 出 願 人 Applicant

名称 触媒化成工業株式会社

CATALYSTS & CHEMICALS INDUSTRIES CO., LTD.

宛名 〒210-0913 日本国神奈川県川崎市幸区堀川町580番地
580, Horiwakawa-cho, Saiwai-ku, Kawasaki-shi,
Kanagawa 210-0913, Japan

国籍 日本国 Japan
nationality

住所 日本国 Japan
residence

3. 代 理 人 Agent

氏名 (8199) 弁理士 鈴木 俊一郎
SUZUKI Shunichiro

宛名 〒141-0031 日本国東京都品川区西五反田七丁目13番6号
五反田山崎ビル6F 鈴木国際特許事務所
SUZUKI & ASSOCIATES, Gotanda Yamazaki Bldg. 6F.,
13-6, Nishigotanda 7-chome, Shinagawa-ku, Tokyo
141-0031, Japan

4. 通知の日付 Date of mailing

27. 07. 99

5. 答弁の内容

(1) 本件国際出願（国際出願番号：PCT/JP98/05638号）に対し、審査官殿は、平成11年7月27日発送の国際予備審査見解書において、

本願請求の範囲に記載の発明は、文献1 (JP, 7-76671, A)、文献2 (JP, 5-2102, A)、および文献3 (JP, 8-295846, A)に記載の発明と同一でありかつ文献1～3から容易に想到しえたものであるという見解を出されました。

(2) しかしながら、本願出願人は、上記のような見解には承服できないので以下に意見を申し述べます。

本願発明は、請求の範囲に記載されているように、

「1. マトリックス形成成分と複合酸化物粒子とを含むハードコート膜形成用塗布液であって、

前記複合酸化物粒子が酸化鉄成分と酸化チタン成分とからなり、酸化鉄成分を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタン成分を TiO_2 に換算したときの重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が0.0005以上0.005未満の範囲にあり、

前記複合酸化物粒子の平均粒径が1～100nmの範囲にあることを特徴とするハードコート膜形成用塗布液。

2. マトリックス形成成分と複合酸化物粒子とを含むハードコート膜形成用塗布液であって、

前記複合酸化物粒子が酸化鉄、酸化チタンおよびシリカからなり、酸化鉄を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタンを TiO_2 に換算し、シリカを SiO_2 に換算したときの重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が0.0005以上0.005未満の範囲にあり、重量比 $\text{SiO}_2/(\text{Fe}_2\text{O}_3+\text{TiO}_2)$ が0.001～1.0の範囲にあり、

前記複合酸化物粒子の平均粒径が1～100nmの範囲にあることを特徴とするハードコート膜形成用塗布液。

3. 前記複合酸化物粒子が有機ケイ素化合物で表面改質されていることを特徴とする請求項1または2に記載のハードコート膜形成用塗布液。

4. 基材表面に請求項1～3のいずれかに記載のハードコート膜形成用塗布液を塗布して形成されたハードコート膜を有するハードコート膜付基材。

5. 前記ハードコート膜表面に反射防止膜を有することを特徴とする請求項4

に記載のハードコート膜付基材。」

に関するものであります。

すなわち、本願発明に係るハードコート膜形成用塗布液は、被膜成分として含まれている複合酸化物粒子が、

(i) 酸化鉄成分と酸化チタン成分とからなり、酸化鉄成分を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタン成分を TiO_2 に換算したときの重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が0.0005以上0.005未満の範囲にあり、平均粒径が1～100nmの範囲にあるものであるか、あるいは

(ii) 酸化鉄、酸化チタンおよびシリカからなり、酸化鉄を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタンを TiO_2 に換算し、シリカを SiO_2 に換算したときの重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が0.0005以上0.005未満の範囲にあり、重量比 $\text{SiO}_2/(\text{Fe}_2\text{O}_3+\text{TiO}_2)$ が0.001～1.0の範囲にあり、平均粒径が1～100nmの範囲にある

ことを特徴とするものであります。

このような複合酸化物粒子を被膜成分として含むことによって、膜が黄色味を帯びることがなく、フォトクロミック性を発現することもなく、実用上十分な耐候性を有するハードコート膜を形成可能となるのであります。

その結果、このようにして形成されたハードコート膜は、耐候性に優れ、しかも表面の硬度が高いために耐擦傷性および耐磨耗性にも優れ、かつフォトクロミック性がないので、光照射によって変色もなく、染色性にも優れている透明性が高く、硬度が大きく、耐擦傷性に優れるとともに屈折率が高いという優れた特徴を有しているのであります。

(3) 本願発明と文献との対比

(3-1) 審査官殿が引用した文献1 (JP, 7-76671, A) には、

(A) シラン化合物の加水分解物…1重量部、

(B) 酸化チタンに該酸化鉄が、酸化鉄/酸化チタン=0.005～0.15の重量組成比で一体的に結合されてなり、粒径が1～100nmである酸化チタン系複合微粒子…0.2～5重量部、

(C) 不飽和若しくは飽和の多価カルボン酸またそれらの酸無水物…0.02～

0.5重量部、

(D) 熱硬化性触媒…0.01～0.2重量部で含まれる光学プラスチック成形品用塗料組成物が開示されております。

このような文献1と本願発明とを対比すると、酸化鉄成分を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタン成分を TiO_2 に換算したときの重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が、本発明では0.0005以上0.005未満の範囲にあるのに対し、文献1では0.005～0.15の範囲にある点で明らかに相違しております。(なお、本発明では0.005未満ですので、0.005は含んでおりません)

しかも文献1では【0025】欄に、「酸化チタン系複合微粒子の適性組成比は酸化鉄／酸化チタン＝0.005～0.15（望ましくは0.01～0.7）とする。0.005未満では、塗膜に近紫外遮断作用をほとんど期待できず、このため、光学プラスチック成形品基体、及び塗膜自体の劣化等が促進されて黄変密着不良を起し易い。0.15を越すと塗膜が酸化鉄に基づく着色が起り、光学プラスチック成形品用塗膜としての用途が大幅に制限される。」と記載されており、本発明のように重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ を積極的に0.005未満とすることを否定しております。

文献2 (JP, 5-2102, A) は、本発明と同一の出願人の出願によるものであり、

マトリックスと複合酸化物粒子とからなるハードコート膜であって、前記複合酸化物粒子が酸化鉄成分と酸化チタン成分とからなり、酸化鉄成分量を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタン成分量を TiO_2 に換算した時の重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が0.005～1.0の範囲にあり、前記複合酸化物粒子の平均粒径が1～100 μm の範囲にあることを特徴とするものが開示されております。

このような文献2と本願発明とを対比すると、酸化鉄成分を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタン成分を TiO_2 に換算したときの重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が、本発明では0.0005以上0.005未満の範囲にあるのに対し、文献2では0.005～1.0の範囲にある点で明らかに相違しております。(なお、本発明では0.005未満ですので、0.005は含んでおりません)

また、文献2にも、【0016】欄に、「この重量比が0.005未満では耐候性が良好なハードコート膜が得られず、1.0を越えるとハードコート膜が黄

変し、透明性にすぐれたハードコート膜が得られないといった傾向が生じる」と記載されており、文献1と同様に、本発明のように重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ を、積極的に0.005未満とすることを否定しております。

なお、文献1および2のように、複合酸化物微粒子中の重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が、0.005以上であると、本願明細書第2頁第17行目～第3頁第4行目に、「前記特開平5-2102号公報に記載されているハードコート膜は、耐候性は改良されているものの、酸化鉄自体が黄色味を持つため、ハードコート膜も多少黄色味を帯びたものになることがある。さらに、上記のような酸化鉄を含む複合酸化物は、フォトクロミック性を有しており、このような複合酸化物を含むハードコート膜に紫外線などが照射されると、ハードコート膜自体の色調が変化する」という問題点がある。なお、このような着色および色調の変化は、光の照射を中止すると、通常元に戻るが、容易に元に戻らない場合もある。

さらに、このようなハードコート膜上に、反射防止用マルチコート層が形成されている場合には、変色したハードコート膜が元の色調に戻るのが抑止されるという問題もある。」と記載されているように、形成したハードコート膜は、フォトクロミック性を有しているため、紫外線照射によって色調が変化してしまい、耐候性に（とくに外観において着色しない点において）優れたハードコート膜を形成できないのであります。

これに対し、本発明のように被膜成分として含まれる複合酸化物微粒子中の重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ を0.0005以上0.005未満という極めて限定的な範囲とすれば、フォトクロミック性を有していないので、被膜が黄色に着色してしまうことはありません。しかもこのような重量比であれば耐候性に優れている上に、屈折率が高く、透明性に優れ、その上耐熱水性、耐候性、耐擦傷性、耐磨耗性、染色性に優れ、しかも基材との密着性にも優れたハードコート膜を形成できるのであります。

文献3（JP, 8-295846, A）には、

(A)粒径1～100ミリミクロンのAl, Sn, Sb, Ta, Ce, La, Fe, Zn, W, Zr, In, Tiから選ばれる1種以上の金属酸化物からなる微粒子および／またはSi, Al, Sn, Sb, Ta, Ce, La, Fe, Zn, W,

Zr, In, Tiから選ばれる2種以上の金属酸化物から構成される複合微粒子
(B)少なくとも一個以上の重合可能な反応基を有するシラン化合物
(C)一分子中にグリシジル基と(メタ)アクリロイル基とを同時に有するエポキシ(メタ)アクリレート

を必須成分として含むコーティング組成物が開示されております。また、このコーティング組成物は本発明と同様にハードコート膜形成用に使用されることが開示されております。さらに、この文献3の【0038欄】に、実施例で 사용되는複合微粒子が、二酸化チタン-三酸化鉄-二酸化ケイ素複合微粒子ゾルであることが開示されております。

しかしながら、この文献3には、前記複合酸化物粒子中に含まれる $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ または $\text{SiO}_2/(\text{Fe}_2\text{O}_3+\text{TiO}_2)$ をどのような範囲とすればよいのか、全く教示されておられません。したがって、本発明のように被膜成分として含まれる複合酸化物微粒子中の重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が、0.0005以上0.005未満という極めて限定的な範囲とすれば、フォトクロミック性が無く、耐候性に優れている上に、屈折率が高く、透明性に優れ、その上耐熱水性、耐候性、耐擦傷性、耐摩耗性、染色性に優れ、しかも基材との密着性にも優れたハードコート膜を形成できるのであり、このような効果は文献3には何ら示唆されていようはずもありません。

(3-2) 本発明のように、被膜成分として含まれる複合酸化物粒子中の酸化鉄成分を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタン成分を TiO_2 に換算したときの重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が0.0005以上0.005未満という極めて限定的とすることによって達成される効果は、本願明細書の実施例1と比較例3との対比から明らかであります。

実施例1は複合酸化物の $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ 重量比が0.002のものを使用して得られたハードコート膜の特性を評価したものであり、比較例は $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ 重量比が0.02のものを使用して得られたハードコート膜の特性を評価したものであります。

表 1

	ゾル重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$	フォトリソ ミミック性	高屈折 性能	耐擦 傷性	外観	染色 性	耐候性		曇化 度	安定性	
							着色	密着性		25日	45日
実施例 1	1/499	無	○	A	○	○	無	○	○	○	×
比較例 1	1/49	有	○	A	○	○	有	○	○	○	×

表 1 の対比から明らかなように、被膜成分として含まれる複合酸化物粒子中の酸化鉄成分を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタン成分を TiO_2 に換算したときの重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が 0.0005 以上 0.005 未満である（実施例 1 参照）と、フォトリソミミック性を有しておらず、耐候性に優れたハードコート膜を形成することができます。

これに対して、文献 1 および 2 のように重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が 0.005 以上であると、フォトリソミミック性を有してしまい、耐候性に優れたハードコート膜を形成することができません（比較例 1 参照）。

(3-3) 以上、説明したように、文献 1～3 には、いずれも、被膜成分として含まれる複合酸化物粒子中の酸化鉄成分を Fe_2O_3 に換算し、酸化チタン成分を TiO_2 に換算したときの重量比 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ が 0.0005 以上 0.005 未満とすることを何れも開示するものではなく、このような限定的な範囲とすることによって達成される効果も何ら教示されておられません。

(4) したがって、本願発明は、文献 1～3 に記載された発明と、同一ではなく、また文献 1～3 から当業者が容易に想到しうるものではありません。

よって、上記のような趣旨をご参酌の上、本願発明は新規性および進歩性を有するとの国際予備審査報告を賜りますようお願いいたします。

答弁書

Re: PCT/JP98/05638

REPLY

5. Substance of reply:

(1) In connection with the present international patent application (International Patent Application No. PCT/JP98/05638), the Examiner has indicated, in the PCT Written Opinion forwarded on July 27, 1999 in the course of international preliminary examination, an opinion to the effect that:

the inventions recited in the claims of the application are identical with those described in Reference 1 (JP, 7-76671, A), Reference 2 (JP, 5-2102, A) and Reference 3 (JP, 8-295846, A) and are also obvious from these References 1 to 3.

(2) However, the Applicant cannot agree to the above opinion and would like to rebut as follows.

The present invention, as recited in the claims, provides:

"1. A coating liquid for forming a hard coat film, comprising a matrix-forming component and particles of a composite metal oxide,

wherein the composite metal oxide particles are composed of an iron oxide component and a titanium oxide component, the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ being in the range of 0.0005 to less than 0.005, provided that Fe_2O_3 and TiO_2 represent the weight in terms of Fe_2O_3

of the iron oxide component and the weight in terms of TiO_2 of the titanium oxide component, respectively, and

wherein the composite metal oxide particles have an average particle size ranging from 1 to 100 nm.

2. A coating liquid for forming a hard coat film, comprising a matrix-forming component and particles of a composite metal oxide,

wherein the composite metal oxide particles are composed of iron oxide, titanium oxide and silica, the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ being in the range of 0.0005 to less than 0.005, and the weight ratio $\text{SiO}_2/(\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{TiO}_2)$ being in the range of 0.001 to 1.0, provided that Fe_2O_3 , TiO_2 and SiO_2 represent the weight in terms of Fe_2O_3 of iron oxide, the weight in terms of TiO_2 of titanium oxide and the weight in terms of SiO_2 of silica, respectively, and

wherein the composite metal oxide particles have an average particle size ranging from 1 to 100 nm.

3. The coating liquid for forming a hard coat film as claimed in claim 1 or 2, wherein the composite metal oxide particles have their surface modified with an organosilicon compound.

4. A substrate coated with a hard coat film, which is formed by applying to the substrate surface

the coating liquid for forming a hard coat film as claimed in any of claims 1 to 3.

5. The substrate coated with a hard coat film as claimed in claim 4, wherein the hard coat film has its surface overcoated with an antireflection film."

That is, the characteristic feature of the coating liquid for forming a hard coat film according to the present invention resides in that:

the composite metal oxide particles contained as a coating film component are composed of:

(i) an iron oxide component and a titanium oxide component, the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ being in the range of 0.0005 to less than 0.005, provided that Fe_2O_3 and TiO_2 represent the weight in terms of Fe_2O_3 of the iron oxide component and the weight in terms of TiO_2 of the titanium oxide component, respectively, the composite metal oxide particles having an average particle size ranging from 1 to 100 nm, or

(ii) iron oxide, titanium oxide and silica, the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ being in the range of 0.0005 to less than 0.005, and the weight ratio $\text{SiO}_2/(\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{TiO}_2)$ being in the range of 0.001 to 1.0, provided that Fe_2O_3 , TiO_2 and SiO_2 represent the weight in terms of Fe_2O_3 of iron oxide, the weight in terms of TiO_2 of titanium oxide and the weight in terms of SiO_2 of silica, respectively, the composite metal oxide

particles having an average particle size ranging from 1 to 100 nm.

Containing the above composite metal oxide particles as a coating film component enables forming a hard coat film which is free from being tinted with yellowish hue and also free from exhibiting photochromism and which has practically satisfactory weather resistance.

As a result, the thus formed hard coat film has advantageous properties, i.e., being excellent in weather resistance, having a high surface hardness to thereby ensure excellent scuffing resistance and attrition resistance, not exhibiting photochromism so that it is free from discoloration by light irradiation, having high dye affinity and high transparency, having high hardness, and exhibiting not only excellent scuffing resistance but also high refractive index.

(3) Comparison between the present invention and the cited references

(3-1) Reference 1 (JP, 7-76671, A) cited by the Examiner discloses a coating composition for optical plastic molding, comprising:

(A) 1 part by weight of a hydrolyzate of silane compound,

(B) 0.2 to 5 parts by weight of fine composite particles based on titanium oxide, comprising titanium oxide to which iron oxide is integrally bound at a

weight ratio of iron oxide/titanium oxide ranging from 0.005 to 0.15, the fine composite particles having a particle size of 1 to 100 μ ,

(C) 0.02 to 0.5 part by weight of an unsaturated or saturated polycarboxylic acid or an anhydride thereof, and

(D) 0.01 to 0.2 part by weight of a thermosetting catalyst.

Upon comparison, it is found that the present invention is clearly different from the disclosure of Reference 1 in that, although, provided that Fe_2O_3 and TiO_2 represent the weight in terms of Fe_2O_3 of iron oxide component and the weight in terms of TiO_2 of titanium oxide component, respectively, the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ is in the range of 0.0005 to less than 0.005 in the present invention, the weight ratio is in the range of 0.005 to 0.15 in Reference 1. (Please note that, in the present invention, the weight ratio is up to less than 0.005, thus not containing 0.005).

In this connection, Reference 1 at paragraph [0025] describes as follows:

"With respect to the appropriate composition ratio of the fine composite particles based on titanium oxide, the ratio of iron oxide/titanium oxide is in the range of 0.005 to 0.15 (preferably 0.01 to 0.7). When the ratio is less than 0.005, substantially no near-ultraviolet screening effect on coating film can be

expected. Consequently, for example, the deteriorations of optical plastic molding base and coating film per se are accelerated, so that yellowing and poor adherence are likely to occur. On the other hand, when the ratio exceeds 0.15, the coating film suffers from coloring attributed to the iron oxide to thereby extensively limit the use as a coating film for optical plastic molding." Therefore, the disclosure of Reference 1 is contradictory to the positive regulation of the weight ratio of $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ to less than 0.005 according to the present invention.

The applicant of Reference 2 (JP, 5-2102, A) is the same as that of the present invention. Reference 2 discloses a hard coat film comprising a matrix and compound oxide particles, wherein the compound oxide particles are composed of an iron oxide component and a titanium oxide component, the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ being in the range of 0.005 to 1.0, provided that Fe_2O_3 and TiO_2 represent the weight in terms of Fe_2O_3 of the iron oxide component and the weight in terms of TiO_2 of the titanium oxide component, respectively, and wherein the compound oxide particles have an average particle size ranging from 1 to 100 μ .

Upon comparison, it is found that the present invention is clearly different from the disclosure of Reference 2 in that, although, provided that Fe_2O_3 and TiO_2 represent the weight in terms of Fe_2O_3 of iron

oxide component and the weight in terms of TiO_2 of titanium oxide component, respectively, the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ is in the range of 0.0005 to less than 0.005 in the present invention, the weight ratio is in the range of 0.005 to 1.0 in Reference 2. (Please note that, in the present invention, the weight ratio is up to less than 0.005, thus not containing 0.005).

In Reference 2, also, it is described at paragraph [0016] that:

"When the weight ratio is less than 0.005, a hard coat film with excellent weather resistance cannot be obtained. On the other hand, when the weight ratio exceeds 1.0, the hard coat film is likely to suffer from yellowing to thereby disenable obtaining a highly transparent hard coat film."

Therefore, as the same as Reference 1, the disclosure of Reference 2 is contradictory to the positive regulation of the weight ratio of $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ to less than 0.005 according to the present invention.

When the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ of the fine compound oxide particles is 0.005 or greater as taught by References 1 and 2, the formed hard coat film is photochromic to thereby suffer from tone change by ultraviolet irradiation, so that a hard coat film which is excellent in weather resistance (especially, from the viewpoint of not coloring in appearance) cannot be formed. In this connection, reference is made to the

description of page 3 line 18 to page 4 line 11 of the specification of the present application:

"the hard coat film described in the Japanese Patent Laid-open Publication No. 5(1993)-2102, although improved in weather resistance, may be slightly tinted with yellowish hue because the iron oxide per se is yellowish. Further, there is the problem that the above compound oxide containing iron oxide is photochromic, so that, when the hard coat film containing the compound oxide is irradiated with, for example, ultraviolet rays, the tone of the hard coat film per se is changed. These coloring and tone change are generally canceled when the irradiation is terminated, but there are occasions in which the restoration to the original state is difficult.

Still further, when an antireflective multicoat layer is formed on the above hard coat film, there occurs the problem that the restoration of the discolored hard coat film to the original tone is inhibited."

By contrast, as in the present invention, when the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ of the fine compound oxide particles contained as a coating film component falls within the extremely limitative range of 0.0005 to less than 0.005, the hard coat film is not photochromic and is free from being yellowed. Moreover, as long as the weight ratio is as mentioned above, the hard coat film

which has not only excellent weather resistance but also high refractive index and high transparency and which is excellent in resistance to hot water, weatherability, scuffing resistance, attrition resistance and dye affinity and further adherence to substrates can be formed.

Reference 3 (JP, 8-295846, A) discloses a coating composition comprising as essential components:

(A) composite fine particles composed of oxides of at least two metals selected from among Si, Al, Sn, Sb, Ta, Ce, La, Fe, Zn, W, Zr, In and Ti and/or fine particles of an oxide of at least one metal selected from among Al, Sn, Sb, Ta, Ce, La, Fe, Zn, W, Zr, In and Ti, having a particle size of 1 to 100 millimicrons,

(B) a silane compound having at least one polymerizable reactive group, and

(C) an epoxy (meth)acrylate having both a glycidyl group and a (meth)acryloyl group in each molecule.

It is further disclosed that this coating composition is used to form hard coat films as in the present invention. Still further, Reference 3 discloses at paragraph [0038] that the composite fine particles employed in the Example consist of a sol of composite fine particles of titanium dioxide/iron trioxide/silicon dioxide.

However, Reference 3 does not teach what should be the range of the ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ or $\text{SiO}_2/(\text{Fe}_2\text{O}_3 +$

TiO₂) in the composite metal oxide particles at all. Therefore, it is quite apparent that, in Reference 3, there is no suggestion as to the finding of the present invention that the effect of being capable of forming the hard coat film which is free from photochromism and has not only excellent weather resistance but also high refractive index and high transparency and which is excellent in resistance to hot water, weatherability, scuffing resistance, attrition resistance and dye affinity and further adherence to substrates can be exerted by regulating the weight ratio Fe₂O₃/TiO₂ of the fine composite metal oxide particles contained as a coating film component so as to fall within the extremely limitative range of 0.0005 to less than 0.005.

(3-2) The effect attained by regulating the weight ratio Fe₂O₃/TiO₂, wherein Fe₂O₃ and TiO₂ represent the weight in terms of Fe₂O₃ of the iron oxide component and the weight in terms of TiO₂ of the titanium oxide component of the composite metal oxide particles contained as a coating film component, respectively, so as to fall within the extremely limitative range of 0.0005 to less than 0.005 according to the present invention is manifest from comparison of the results of Example 1 and Comparative Example 1 of the present application.

In Example 1, a hard coat film was produced with the use of a composite metal oxide whose weight ratio

$\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ was 0.002 and the properties of the hard coat film were evaluated. In Comparative Example 1, a hard coat film was produced with the use of a composite metal oxide whose weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ was 0.02 and the properties of the hard coat film were evaluated.

Table 1

	Sol wt. ratio	Phot- ochr-	High refr-	Scuf- fing	Appe- aran-	Dye affi-	Weather resistance		Clou- dine-	Stability	
	$\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$	omism	acti- vity	resi- stan- ce	ce	nity	colo- ring	adhe- ren- ce	ss	25 days	45 days
Example 1	1/499	none	o	A	o	o	none	o	o	o	x
Comp.Ex. 1	1/49	occu- rred	o	A	o	o	occu- rred	o	o	o	x

As apparent from comparison of the results of Table 1, when the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$, wherein Fe_2O_3 and TiO_2 represent the weight in terms of Fe_2O_3 of the iron oxide component and the weight in terms of TiO_2 of the titanium oxide component of the composite metal oxide particles contained as a coating film component, respectively, is in the range of 0.0005 to less than 0.005 (see Example 1), a hard coat film which is free from photochromism and excellent in weather resistance can be formed.

By contrast, when the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ is 0.005 or greater as in References 1 and 2, the hard coat film has the photochromism and a hard coat film

having excellent weather resistance cannot be formed (see Comparative Example 1).

(3-3) As apparent from the foregoing, none of References 1 to 3 discloses regulating the weight ratio $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$, wherein Fe_2O_3 and TiO_2 represent the weight in terms of Fe_2O_3 of the iron oxide component and the weight in terms of TiO_2 of the titanium oxide component of the compound oxide particles contained as a coating film component, respectively, so as to fall within the range of 0.0005 to less than 0.005. And none of References 1 to 3 teaches the effect attained by this limitative range.

(4) Therefore, the present invention is neither identical with those described in References 1 to 3 nor easily anticipated on the basis of the teachings of References 1 to 3 by persons having common knowledge in the technical field to which the present invention pertains.

It is respectfully requested that an International Preliminary Examination Report to the effect that the present invention is novel and does involve an inventive step be issued, taking the above remark into account.